



⑪ Numéro de publication : **0 647 724 A1**

⑫ **DEMANDE DE BREVET EUROPEEN**

⑳ Numéro de dépôt : **94420269.6**

⑤① Int. Cl.<sup>6</sup> : **C22F 1/18**

㉔ Date de dépôt : **07.10.94**

③① Priorité : **11.10.93 FR 9312330**

④③ Date de publication de la demande :  
**12.04.95 Bulletin 95/15**

⑧④ Etats contractants désignés :  
**DE ES SE**

⑦① Demandeur : **Compagnie Européenne du Zirconium CEZUS**  
**Tour Manhattan**  
**La Défense 2**  
**6, place de l'Iris**  
**F-92400 Courbevoie (FR)**

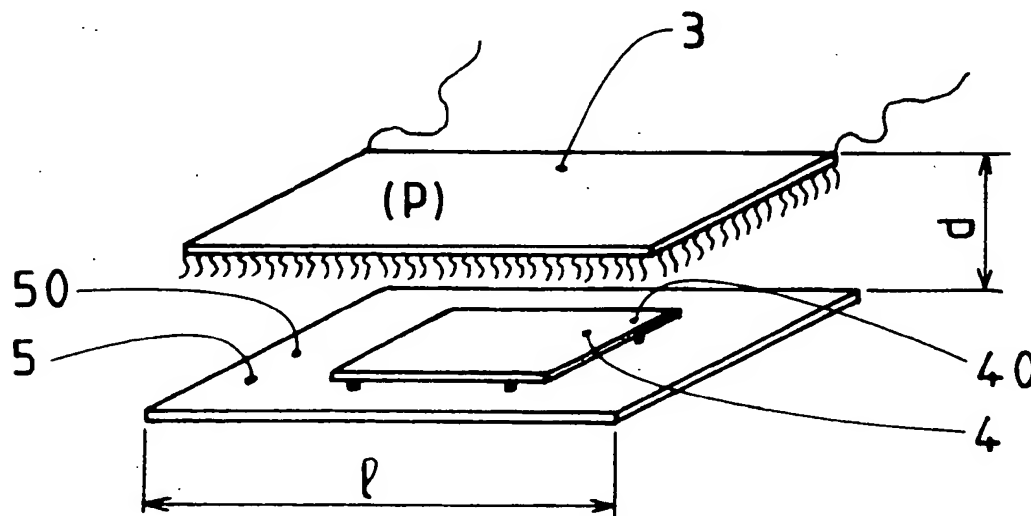
⑦② Inventeur : **Dumas, Gérard**  
**16, rue du Président Coty**  
**F-73200 Albertville (FR)**  
Inventeur : **Barberis, Pierre**  
**26, avenue Jean Jaurès**  
**F-73200 Albertville (FR)**  
Inventeur : **Bunel, Gérard**  
**3, rue du Vieux Bourg**  
**F-61370 Echauffour (FR)**

⑦④ Mandataire : **Mougeot, Jean-Claude et al**  
**PECHINEY**  
**28, rue de Bonnel**  
**F-69433 Lyon Cedex 03 (FR)**

⑤④ **Procédé de fabrication d'un produit plat en alliage de zirconium comprenant un réchauffage dans le domaine bêta par infrarouges.**

⑤⑦ L'invention a pour objet un procédé de fabrication d'un produit plat (4) en alliage de zirconium consistant en un feuillard, bande ou tôle (4) d'épaisseur comprise entre 0,4 et 3 mm, ce procédé comprenant après un laminage à froid un réchauffage et un maintien dans le domaine bêta dudit produit, ledit maintien étant suivi d'un refroidissement rapide, caractérisé en ce que on effectue ledit réchauffage et ledit maintien au moyen de lampes (3) à rayons infrarouges de longueur d'onde comprise entre 0,8 et 5 micromètres assurant sur la largeur du produit (4) une différence maximale de températures inférieure à 35°C, ladite largeur étant comprise entre 50 et 600 mm.

L'invention s'applique à la fabrication des pièces de fixation et d'espacement des réacteurs nucléaires.



**FIG 3**

**EP 0 647 724 A1**

L'invention concerne un procédé de fabrication d'un produit plat en alliage de zirconium consistant en un feuillard, bande ou tôle d'épaisseur comprise entre 0,4 et 3 mm, ce procédé comprenant après un laminage à froid un réchauffage et un maintien dans le domaine bêta dudit produit, ledit maintien étant suivi d'un refroidissement rapide, selon le préambule de la revendication 1.

Il est courant de désigner les opérations de traitement thermique ci-dessus par une expression telle que "trempe depuis le domaine bêta".

On connaît un tel procédé par la demande de brevet FR-A-2673 198, selon laquelle une bande en Zircaloy 2 ou Zircaloy 4 passe entre des galets d'au moins deux couples de galets successifs alimentés en courant électrique de façon à former avec la bande une boucle dudit courant. Des irrégularités de contact électrique entre les galets et la bande rendent ce procédé difficile à utiliser à l'échelle industrielle, la reproductibilité et l'homogénéité des températures atteintes dans le produit n'étant pas alors satisfaisantes.

On connaît par ailleurs par FR-A-2303865 = GB-A-1537930 un procédé dans lequel une tôle en alliage de zirconium pour usage en réacteur nucléaire, par exemple en Zircaloy 4 d'épaisseur 4 mm, est réchauffée jusqu'à au moins 900°C par induction haute fréquence. Le réchauffage de la tôle est superficiel. L'utilisation d'une fréquence plus faible permet le réchauffage de la tôle dans toute son épaisseur mais avec des gradients de température importants et des déformations lors d'un refroidissement rapide succédant à ce réchauffage. La seule température de réchauffage donnée en exemple est "900°C", correspondant au domaine (alpha + bêta) dans le cas du Zircaloy 2 ou 4.

La demanderesse s'est donné pour tâche de mettre au point un procédé de réchauffage et trempe depuis le domaine bêta: à la fois reproductible, rapide, et donnant une résistance à la corrosion dans les réacteurs nucléaires plus reproductible obtenue par la mise en oeuvre desdites conditions de trempe suivie éventuellement d'un recuit en alpha.

Le procédé de l'invention est caractérisé en ce que on effectue ledit réchauffage et ledit maintien au moyen de lampes à rayons infrarouges de longueur d'onde comprise entre 0,8 et 5 micromètres et de préférence entre 1 et 3 micromètres assurant sur la largeur du produit une différence maximale de températures inférieure à 35°C, ladite largeur étant comprise entre 50 et 600 mm.

Ce réchauffage se fait le plus souvent sous une atmosphère de gaz inerte, typiquement à base d'argon, d'azote ou d'hélium, pour éviter l'oxydation du produit. Alors que le profil de température travers du produit comporte des écarts supérieurs à 60°C en induction à flux transversal, avec des températures plus faibles entre chaque bord longitudinal et le milieu, le profil travers obtenu par réchauffage aux infrarouges est aplati avec un léger affaissement près de chaque bord longitudinal, l'écart total de température étant dans chaque section inférieur à 35°C. Les variations de température en long sont typiquement inférieures à 10°C. Le réchauffage est très rapide, il dure par exemple moins de 40 s entre l'ambiante et 1040°C pour une bande ou tôle d'épaisseur 1,4 mm. L'alimentation et le pilotage des lampes ou tubes à rayons infrarouges procurent une bonne fiabilité de ce réchauffage, donnant une succession d'avantages:

- choix beaucoup plus précis de la position des températures minimale et maximale du produit dans le domaine bêta;
- bien meilleur contrôle de la taille des grains bêta et des mises en solution avant le refroidissement rapide (la trempe);
- microstructure après refroidissement plus homogène;
- par suite gains de poids en corrosion uniforme et aussi nodulaire plus réguliers, et en moyenne plus faibles si on a effectué le réchauffage dans la partie inférieure du domaine bêta.

Pour le réchauffage et le maintien dans le domaine bêta, on préfère utiliser des lampes dont les tubes infrarouges sont disposées selon la direction longitudinale du produit plat, chaque tube étant piloté individuellement. On ramène ainsi la différence maximale de température travers du produit en-dessous de 25°C, et typiquement comprise entre 10 et 20°C.

Les conditions préférentielles de mise en oeuvre de l'invention peuvent être précisées davantage dans le cas des alliages Zircaloy 2 et Zircaloy 4. Les compositions de ces alliages Zircaloy 2 et Zircaloy 4 sont données par les spécifications ASTM B 352-85, ces alliages y correspondent respectivement aux nuances R 60804 et R 60802.

Ces conditions préférentielles s'appliquent aussi aux mêmes alliages modifiés par abaissement de la teneur en Sn jusqu'à un minimum de 0,5%, et à l'alliage Zr-Fe-V décrit par le brevet FR-B-2624136 = US-A-4981527 de la demanderesse.

Pour tous les alliages qui précèdent, le domaine bêta comprend au moins l'intervalle de températures 980 à 1100°C.

Selon une première condition préférentielle, le début du refroidissement rapide a beaucoup d'importance sur les résistances à la corrosion uniforme d'une part et nodulaire d'autre part. Les gains de masse surfaciques correspondants sont tous deux fortement diminués si le refroidissement du produit plat est de 40 à 100°C/s

entre 1000 et 800°C.

Selon le procédé de l'invention pour la fabrication d'un produit plat, il est souvent pratique de réchauffer l'alliage de Zr au moyen de lampes à rayons infrarouges rayonnant sur une face du produit, un réfractaire de préférence blanc étant situé à faible distance de l'autre face de ce produit. Le fait de passer de 40 mm à 20 mm de ce réfractaire entraîne une augmentation de la vitesse de montée en température du produit de 40 à 60% et cette distance est de préférence choisie inférieure à 30 mm. Un réfractaire blanc réfléchit la plus grande partie de l'énergie thermique rayonnée par l'autre face et, à chauffage infrarouge constant, permet en lui-même d'obtenir une vitesse de montée en température du produit plat 1,2 fois plus élevée qu'un réfractaire de couleur sombre.

Selon une deuxième condition préférentielle, profitant de l'excellente homogénéité de température du produit grâce au réchauffage aux infrarouges, on réchauffe le produit avec une température typiquement en tous ses points comprise entre 1020 et 1060°C avant de le refroidir rapidement. Le temps de montée en température est particulièrement court:

- de 15 à 40 secondes lorsque le produit a une épaisseur comprise entre 0,4 et 1,4 mm;
- de 30 à 80 secondes lorsque le produit a une épaisseur comprise entre 1,4 et 3 mm.

Selon une autre condition s'appliquant de façon générale, de façon à limiter le grossissement de la structure d'orientation bêta dans cette phase d'homogénéisation avant refroidissement rapide, le maintien dans le domaine bêta comprend de préférence 5 à 30 secondes au-dessus de 980°C.

Enfin selon une troisième condition préférentielle, il est souvent préféré de réaliser la succession des traitements de l'invention au défilé, le produit plat circulant entre un ensemble de tubes infrarouges et soit un réfractaire disposé à moins de 30 mm du produit, soit un deuxième ensemble de tubes infrarouges, le produit étant alors protégé sur ses deux faces par du gaz neutre, et circulant ensuite à travers des moyens de refroidissement rapide, par exemple de l'eau ou un jet de gaz neutre.

Selon cette technique de traitement au défilé, le produit plat étant typiquement sous la forme d'une bande sous tension circulant entre deux rouleaux respectivement dérouleur et enrouleur, on a remarqué que le réchauffage entre deux ensembles de tubes infrarouges réchauffant symétriquement les deux faces de la bande limitait beaucoup les déformations en travers du produit après le refroidissement rapide: la dénivellation travers est alors au maximum de 0,5% de la largeur, alors que avec le chauffage aux infrarouges d'une seule face cette dénivellation travers est typiquement de 1,5 à 2% de la largeur.

La planéité du produit après trempe permet d'éviter un planage entre rouleaux dont l'écrouissage irrégulier est défavorable à la résistance à la corrosion, ou tout au moins de faciliter ce planage en limitant les irrégularités d'écrouissage et leur dit effet défavorable.

### AVANTAGE DE L'INVENTION

- Obtention d'une structure plus régulière, donnant une résistance à la corrosion en moyenne améliorée et plus reproductible.
- Suppression ou limitation des déformations travers, évitant ou limitant les planages et leur effet néfaste à la résistance à la corrosion dans un réacteur nucléaire.
- Rapidité surprenante des traitements.

### EXEMPLES

Les figures 1 et 2 représentent des profils de température sur produit plat en alliage de Zr obtenus respectivement par réchauffage par rayons infrarouges et par induction.

La figure 3 représente une disposition d'essais de chauffage par infrarouges de tôles en Zircaloy 4.

La figure 4 représente les variations de température observées sur les tôles testées selon la disposition de la figure 3.

La figure 5 représente une installation de traitement selon l'invention de feuillets en alliages de Zr.

#### 1) Figures 1 et 2

On a comparé les profils de températures 1 et 2 obtenus respectivement en chauffage par infrarouges courts (IR) et en induction électrique flux transverse sur des tôles en Zircaloy 4 de largeur 300 mm et d'épaisseur comprise entre 2 et 3 mm, à 1000°C.

Le profil 1 devient bombé presque plat à 10 à 15 mm de chaque bord de la tôle correspondant à ses extrémités A<sub>1</sub> et A<sub>2</sub>. La différence de température maximale  $\Delta T_1$  est liée à l'effet des bords et inférieure à 20°C.

Le profil 2 est biconcave, avec des creux de température tels que C<sub>2</sub> situés à D = 40 à 50 mm de chaque

bord ( $A_2$  ou  $B_2$ ); La différence de température maximale  $\Delta T_2$  est de 60 à 70°C.

## 2) Essais de chauffage statique aux rayons infrarouges de tôles en Zircaloy 4 - (figures 3 et 4).

### 2.1 Installation (figure 3)

Elle comporte des tubes à infrarouges "courts" (longueur d'onde 1 à 3 micromètres) avec filament en tungstène porté à 2100°C environ. Alimentation en courant alternatif 230 V, puissance électrique de 3 kW par tube.

Les connexions des tubes ne devant pas dépasser 350°C, elles sont refroidies par un soufflage d'air important: 13 m<sup>3</sup>/heure/connexion. On peut aussi utiliser des tubes avec circulation d'eau.

Le panneau de chauffage 3 comporte 6 tubes, soit une puissance totale de 18 kW. Il développe une densité de puissance  $P$  d'environ 180 kW à une distance " $d$ " de la tôle 4 de 40 mm, et de 220 kW/m<sup>2</sup> à 20 mm.

La tôle 4 de largeur 250 mm est disposée à l'écartement " $d$ " des tubes sur une sole 5 qui déborde de la tôle 4 avec une largeur " $l$ " de 300 mm.

### 2.2. Essais

On a suivi la température de la face supérieure 40 de tôle 4 (figure 4), successivement d'épaisseurs 0,88, 1,48 et 2,85 mm. La faible inertie du dispositif est incontestable: le panneau atteint son régime de fonctionnement en quelques dixièmes de secondes à peine; de même lorsque l'on coupe l'alimentation du panneau 3, une fois dépassée la température de transus bêta comprise entre 960 et 980°C. Ceci entraîne une grande souplesse de pilotage du système.

#### 2.2.1. Sole 5 sombre / $d = 40$ mm

Epaisseur 0,88 mm : courbe a

Le panneau 3 est trop éloigné de la tôle 4 et la sole "sombre" absorbe une grande partie de l'énergie rayonnée par la face inférieure de la tôle.

Dans ces conditions, la température de la tôle 4 s'élève rapidement à 40°C/s, avant de tendre asymptotiquement vers l'état stationnaire à 900°C, pour lequel les pertes radiatives et convectives compensent l'apport du rayonnement IR.

#### 2.2.2 Réfractaire blanc 50 / $d = 20$ mm

Pour augmenter le rendement de l'installation, on a:

- rapproché le panneau 3, " $d$ " passant de 40 à 20 mm;
- placé la plaque sur un réfractaire blanc 50

afin de renvoyer une grande partie de l'énergie rayonnée par la face inférieure.

Le rendement amélioré conduit à des bilans thermiques sur les deux faces de la tôle 4 qui ont permis de dépasser le transus bêta sur tous les échantillons testés.

Les inflexions des courbes vers 800°C et 950 à 1000°C permettent de visualiser clairement le domaine biphasé (alpha + bêta).

Une fois le domaine bêta atteint, on a coupé l'alimentation du panneau et on a enregistré la phase de refroidissement de la tôle 4.

Pour ces essais de chauffage aux infrarouges des tôles 4 par leur seule face 40, le bilan des vitesses de chauffage et de refroidissement est le suivant:

Tableau 1 (d = 20 mm)

Epaisseur tôle  (mm)	Courbe de la figure 4	Temps de montée à 1025°C  (s)	Vitesse moyenne de montée  (°C/s)	Vitesse moyenne de refroidis- sment de 1000 à 800°C (°C/s)
0,88	b	20	50	25
0,88 oxydé	bo	18	55	25
1,48	c	35	25 à 30	13
2,85	d	60	15 à 20	8

Le cas <sup>b</sup><sub>o</sub> montre qu'une légère oxydation de la tôle améliore la vitesse de montée en température, par meilleure absorption des IR.

### 3) Dispositif de traitement selon l'invention au défilé (figure 5)

La bande 41 en Zircaloy 2 ou 4 est en tension entre deux rouleaux dérouleur 6 et enrouleur 7. Elle défile entre un panneau 3 de lampes ou tubes infrarouges situées à 20 mm de la bande 41 et un panneau réfractaire blanc 50 situé à 10 à 20 mm de la bande 41. La vitesse de défilement est comprise entre 0,7 à 1,5 m/min. Un moyen de contrôle 8 de la température de la bande 41 à la sortie du chauffage aux infrarouges sert en même temps au réglage de la puissance du panneau 3. La bande 41 traverse ensuite une zone de refroidissement 9 par gaz inerte pulsé, ou par de l'eau ou de l'azote liquide projeté en fines gouttelettes. Du gaz inerte, par exemple de l'argon, de l'hélium ou de l'azote circule selon les flèches 10 et 11 sur chaque face de la bande 41.

Le panneau réfractaire 50 peut être remplacé par un second panneau à infrarouges 30 situé à 20 mm de la bande 41. Le chauffage symétrique 3 et 30 améliore à la fois la productivité et la qualité obtenue.

### Applications industrielles

Pièces de fixation et d'espacement, typiquement conformées et usinées, de réacteurs nucléaires à eau pressurisée ou à eau bouillante.

### Revendications

- Procédé de fabrication d'un produit plat (4,41) en alliage de zirconium consistant en un feuillard, bande (41) ou tôle (4) d'épaisseur comprise entre 0,4 et 3 mm, ce procédé comprenant après un laminage à froid un réchauffage et un maintien dans le domaine bêta dudit produit, ledit maintien étant suivi d'un refroidissement rapide et éventuellement d'un recuit, caractérisé en ce qu'on effectue ledit réchauffage et ledit maintien au moyen de lampes (3) à rayons infrarouges de longueur d'onde comprise entre 0,8 et 5 micromètres assurant sur la largeur du produit une différence maximale de températures ( $\Delta T_1$ ) inférieure à 35°C, ladite largeur étant comprise entre 50 et 600 mm.
- Procédé selon la revendication 1, caractérisé en ce que lesdites lampes (3) comprennent des tubes à infrarouges disposés selon la direction longitudinale dudit produit (4,41) chaque tube étant piloté individuel-

lement.

3. Procédé selon la revendication 2, caractérisé en ce que ladite différence de température ( $\Delta T_1$ ) est inférieure à 25°C.
4. Procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 3, caractérisé en ce que ledit alliage est le Zircaloy 2 ou le Zircaloy 4.
5. Procédé selon la revendication 4, caractérisé en ce que le refroidissement rapide du produit comporte un refroidissement de 40 à 100°C/s entre 1000 et 800°C.
6. Procédé selon l'une quelconque des revendications précédentes, caractérisé en ce que on effectue ledit réchauffage et ledit maintien dans le domaine bêta avec les lampes à rayons infrarouges rayonnant sur une face (40) du produit (4,41), et un ou des réfractaire(s) blanc(s) (50) placé(s) à moins de 30 mm de l'autre face du produit.
7. Procédé selon l'une quelconque des revendications 4 ou 5, caractérisé en ce que on réchauffe le produit (4) jusqu'à une température comprise entre 1020 et 1060°C avant de le refroidir rapidement, le produit ayant une épaisseur comprise entre 0,4 et 1,4 mm et le temps de montée en température étant compris entre 15 et 40 secondes.
8. Procédé selon l'une quelconque des revendications 4 ou 5, caractérisé en ce que on réchauffe le produit (4) jusqu'à une température comprise entre 1020 et 1060°C avant de le refroidir rapidement, le produit ayant une épaisseur comprise entre 1,4 et 3 mm et le temps de montée en température étant compris entre 30 et 80 secondes.
9. Procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 8, caractérisé en ce que ledit maintien dans le domaine bêta comprend 5 à 30 secondes au-dessus de 980°C.
10. Procédé selon la revendication 7, caractérisé en ce que on effectue lesdites opérations de réchauffage, de maintien et de refroidissement rapide au défilé, ledit produit plat (41) circulant entre un ensemble de tubes infrarouges (3) et un réfractaire (50) disposé à moins de 30 mm du produit (41), le produit étant alors protégé sur ses deux faces par du gaz neutre, et circulant ensuite à travers des moyens de refroidissement rapide (9), par exemple de l'eau ou un jet de gaz neutre.
11. Procédé selon la revendication 7, caractérisé en ce que on effectue lesdites opérations de réchauffage, de maintien et de refroidissement rapide au défilé, ledit produit plat (41) circulant entre deux ensembles de tubes infrarouges (3,30) réchauffant symétriquement chacune de ses deux faces, le produit étant alors protégé sur ses deux faces par du gaz neutre, et circulant ensuite à travers des moyens de refroidissement rapide (9), par exemple de l'eau ou un jet de gaz neutre.

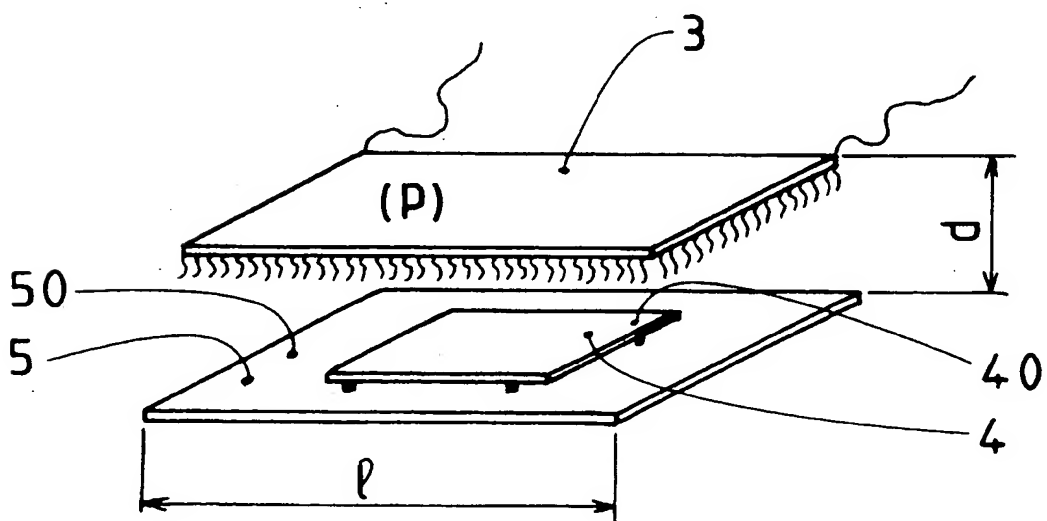
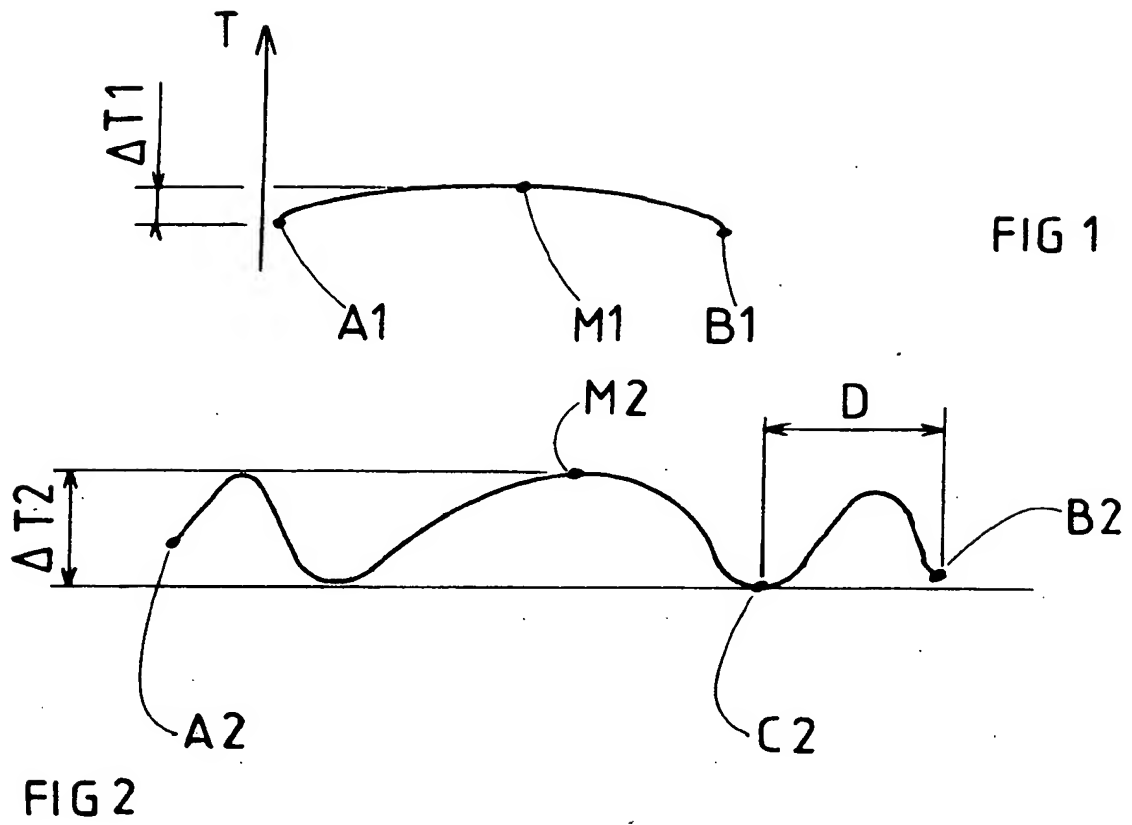
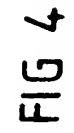


FIG 3





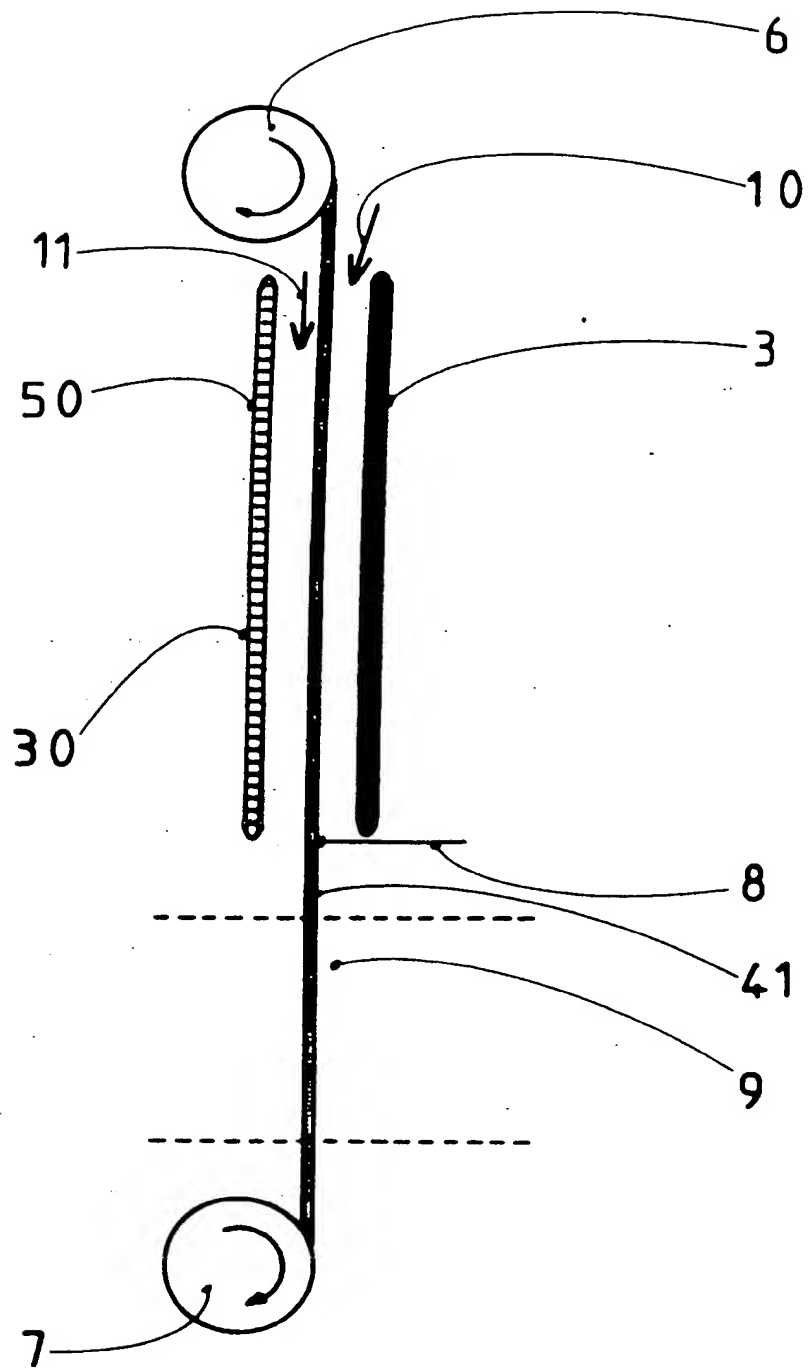


FIG 5



Office européen  
des brevets

# RAPPORT DE RECHERCHE EUROPEENNE

Numéro de la demande  
EP 94 42 0269

DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS			
Catégorie	Citation du document avec indication, en cas de besoin, des parties pertinentes	Revendication concernée	CLASSEMENT DE LA DEMANDE (Int.Cl.6)
Y,D	FR-A-2 673 198 (COMPAGNIE EUROPEENNE DU ZORCONIUM CEZUS) *Revendications 1-10* ---	1	C22F1/18
Y	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 007, no. 034 (C-150) 10 Février 1983 & JP-A-57 188 660 (KOBÉ SEIKOSHO K.K.) 19 Novembre 1982 * abrégé *	1	
A,D	FR-A-2 303 865 (AB ASEA-ATOM) * le document en entier *	1-11	
A	US-A-4 636 267 (JACOBSEN ET AL.) * le document en entier *	1-11	
A	EP-A-0 213 771 (WESTINGHOUSE ELECTRIC CORPORATION) *Revendications 1-19* -----	1-11	
			DOMAINES TECHNIQUES RECHERCHES (Int.Cl.6)
			C22F
Le présent rapport a été établi pour toutes les revendications			
Lieu de la recherche		Date d'achèvement de la recherche	Examinateur
LA HAYE		12 Décembre 1994	Lippens, M
CATEGORIE DES DOCUMENTS CITES			
X : particulièrement pertinent à lui seul Y : particulièrement pertinent en combinaison avec un autre document de la même catégorie A : artère-plus technologique O : divulgation non écrite F : document intercalaire		T : théorie ou principe à la base de l'invention E : document de brevet antérieur, mais publié à la date de dépôt ou après cette date D : cité dans la demande L : cité pour d'autres raisons & : membre de la même famille, document correspondant	

EP 0 647 724 A1 (P.0202)

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**